

名古屋大学における ^{14}C -AMS 研究の黎明期 (1980-1990)
Dawning of ^{14}C -AMS studies at Nagoya University (1980-1990)

中村 俊夫^{1*}

Toshio NAKAMURA^{1*}

¹ 名古屋大学年代測定総合研究センター, 〒464-8602 名古屋市千種区不老町

¹ Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602 JAPAN

*Correspondence to: Toshio NAKAMURA; E-mail:nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

A plan to establish an AMS facility dedicated to radiocarbon (^{14}C) measurement, discussed by Prof. Nakai and his colleagues, was authorized in 1978 at Nagoya University. Dr. Ken Purser, the president of General Ionex Corporation, USA, was invited to Nagoya University to present a talk on his plan to manufacture an ultra-sensitive mass spectrometer for natural-level ^{14}C measurement. In the end, his second product, a model 4130-AMS ^{14}C analyzer, was successfully introduced into the Radioisotope Center, Nagoya University, in 1981/82. The first ^{14}C signal was detected with the machine in February 1983 and routine ^{14}C measurements were started in the autumn of 1983. The AMS system has processed totally 8,612 unknown samples by July in 2000, after that time, he transferred his role of ^{14}C measurements to another new successor. A second AMS system, dedicated to high-precision and high-accuracy ^{14}C measurement, with a recombinator system to measure three carbon isotopes ^{12}C , ^{13}C and ^{14}C simultaneously, produced by High Voltage Engineering Europe BV, The Netherlands, was installed in 1996/97. The machine has been in operation since 2000. The initial stage of ^{14}C -AMS research at Nagoya University is summarized in this article.

Keywords: AMS, Ultra-sensitive mass spectrometer, Radiocarbon, Radiocarbon dating, cosmogenic nuclide

キーワード: 加速器質量分析, 超高感度質量分析, 放射性炭素, 放射性炭素年代測定, 宇宙線生成核種

1. はじめに

タンデトロン加速器質量分析計 1 号機 (a model 4130A ^{14}C analyzer, Ultra-sensitive mass spectrometer option, 米国 General Ionex 社製) が 1981 年 3 月及び 1982 年 3 月の 2 回に分けて名古屋大学に導入されて、はや 30 年近くが経過しようとしている。1983 年の 9 月から ^{14}C 測定を開始し、この間、放射性炭素 (^{14}C) を化学トレーサーとした環境 ^{14}C 濃度分布に関する研究及びさまざまな環境試料の ^{14}C 年代測定に基づく研究が行われた。2000 年 7 月末までの測定数は 8,612 個である。この間、タンデトロン加速器質量分析計 1 号機は、学内共同利用機器として研究・教育に利用され、また、国内や諸外国の研究者の共同研究の場としても盛んに利用されてきた。その後、 ^{10}Be の測定に向けて改造を試みたが、システム全体の老朽化が進んでおり、実現できていない。現在は、加速器真空ラインの真空漏れがひどく、高電圧が付加できる高真空が達成できないでいる。まもなく、放射線発生装置としての使用をやめることになろう。

一方で、1996年及び1997年の2カ年計画で、新たにタンデトロン加速器質量分析計（別称、加速器年代測定システム）2号機が導入された。この分析計の調整は2000年3月にはほぼ完了して、その後の ^{14}C 測定利用はこのタンデトロン2号機が引き継いだ。2000年4月から共同利用に供している。この2号機による ^{14}C 測定は、ほぼ10年間に、未知試料及び標準体を含めると既に14,890個（2009年12月末において）を超えている。1号機、2号機を用いた研究の成果は、名古屋大学加速器質量分析計業績報告書I-XXI(1989-2010)の他、多くの学術雑誌に報告されている。現在までの共同利用研究として、 ^{14}C 年代測定では、地質学、堆積学、古環境学、海洋学、地震学、活断層科学、雪氷学、水理学、考古学、歴史学、人類学、文化財科学などの分野で、また環境 ^{14}C 濃度測定では、地球化学、環境科学、海洋科学、木材科学、保健物理学、食物科学などきわめて幅広い分野で利用されている。

本報では、1981年に名古屋大学にタンデトロン加速器質量分析計1号機が導入されたいきさつ、その後の研究や共同利用の進展、さらに分析計2号機導入などを概観する。

2. 名古屋大学における加速器質量分析計1号機導入の経緯

名古屋大学の加速器質量分析計（当初の名称は天然放射能測定装置）1号機の導入および ^{14}C 測定の経過概要を表1にまとめる。タンデトロン加速器質量分析計1号機は、昭和55（1980）年度の概算要求で設置されることが決定されたが、それに先だって、名古屋大学では、装置導入のための準備が進められていた。

表1 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計のこれまでの経過

1978年4月	名古屋大学アイソトープ総合センターよりタンデトロン加速器質量分析計を概算要求
1978年9月	GICのDr. K. H. PurserのAMSに関する名古屋大学講演会
1978年12月	大蔵省段階で不可
1979年4月	タンデトロン加速器質量分析計を概算要求し、1980-1981年度の2カ年計画でアイソトープ総合センターに設置されることが決定
1981年2月	加速器実験室（第一実験室：127 m ² ）完成
3月	タンデトロン加速器質量分析計初年度分の搬入
1982年2月	タンデトロン加速器質量分析計二年度分の搬入
10月	1.6 MVで炭素ビームを加速
1983年2月	$^{14}\text{C}^{3+}$ を始めて検出
9月	^{14}C 年代測定を開始
1985年3月	試料調製室・測定準備室（101.45 m ² ）を完成
1987年1月	学内の共同利用を開始
1990年6月	年代測定資料研究センター発足(学内共同利用研究センター) 初代センター長：中井信之（当時：理学部教授）
1991年3月	マルチカソード（28個、18個）イオン源に改良

1978年9月4日に、General Ionex Corporation (Newburyport, Massachusetts, USA)の社長であった Kenneth H. Purser 氏を名古屋大学アイソトープ総合センターに迎え、"Direct Detection of ^{14}C and Other Rare Atoms Using Accelerator Techniques"の題目で講演をお願いした (Purser 1979)。この講演計画をまとめたのは、当時の名古屋大学理学部地球科学科地球化学講座の中井信之教授であった。中井教授は、同位体比を用いて古環境復元の研究を行っており、年代軸の設定のために ^{14}C 年代を頻繁に利用していたことから、名古屋大学に ^{14}C 年代測定システムを導入することを検討していた。ところで、Purser 氏が提案する年代測定のための最新装置は、1977年に実証された最新の技術に基づいていた。それまで ^{14}C の検出に用いられてきた放射能測定法と違い、 ^{14}C 原子を直接計測する方法で、多くの研究者の興味を引いたが、他方では、当時はまだ十分には確立されていない技術であったことから、新型装置の導入には大きなリスクがあると考えられていた。一方、Purser 氏は、米国の Rochester 大学の教授として、当初から加速器質量分析 (accelerator mass spectrometry, AMS) 法の開発に携わっていた。AMS 法による ^{14}C 測定の最初の成功を報じた、米国の科学雑誌 Science の 1977 年 6 月号に掲載された 2 本の論文 (Nelson et al. 1977, Bennett et al. 1977) のうち、後者の論文の共著者になっている。Purser 氏は当時 General Ionex Corporation という加速器関連の会社を経営しており、いち早く AMS 法の特許を取得し (Purser 1977)、AMS の専用装置の開発に取りかかっていた。Purser 氏の名古屋訪問の目的は、開発中の装置 (タンデトロン加速器質量分析計) の売り込みにあったのである。アイソトープ総合センターが発行した当時の広報誌 "トレーサー" に、Purser 氏の講演記録 (Purser 1979)、及び、当時、この装置の導入に尽力されていた中井信之名誉教授、古川路明名誉教授 (当時、理学部化学科助教授) (中井 1979, 古川 1979) による新技術についての解説や期待される応用研究などが掲載されている。

表 2 加速器質量分析法の応用に関する名古屋大学研究集会のプログラム (1979/06/22 開催)
(名古屋大学アイソトープ総合センター1979)

-
1. 中埜栄三 (アイソトープ総合センター長) : はじめに
 2. 福井崇時 (理学部物理学教室) : 核物理学分野 I
 3. 加藤俊郎 (工学部原子核工学教室) : 核物理学分野 II
 4. 古川路明 (理学部化学教室) : 核化学分野
 5. 中井信之 (理学部地球科学教室) : 地球化学分野
 6. 茶谷邦男 (愛知県衛生研究所) : 環境科学分野 : 環境水中のトリチウム濃度
 7. 吉田正夫 (農学部土壌学教室) : 土壌学分野 : 火山性埋没腐植土の C-14 年代
 8. 井関弘太郎 (文学部地理学研究室) : 地理学分野
 9. 楢崎彰一 (文学部考古学研究室) : 考古学分野
 10. 中埜栄三 (アイソトープ総合センター) : 生物学分野
-

名古屋大学では、この装置を学内の共同利用機器として名古屋大学アイソトープ総合センターに設置する 1979 年度概算要求を 1978 年に行ったが、不成功に終わった。しかし、その後もアイソト

ープ総合センターでは、タンデトロン加速器質量分析計の予算要求のための準備が活発に進められた。1979年6月22日には、この装置に関心を持つ研究者を集めて研究集会が行われた(表2)。そして、二度目の1980年度概算要求で予算が認められたのである。

3. タンデトロン加速器質量分析計1号機による ^{14}C の検出

1号機による ^{14}C の検出に至る経過を表3に示す。1981年3月に初年度分そして1982年1月に次年度分が搬入され組立、調整が行われた(図1)。日本の輸入代理店として第二精工舎にお手伝いを頂いた。当時の名古屋営業の渡辺所長、また技術担当の佐藤 修、逆瀬卓郎、坂井昭夫の3氏には大奮闘の働きをして頂いた。1982年3月26日には、飯島宗一学長、文部省学術国際局河野岩根研究助成課長ほかの出席のもとに、タンデトロン加速器質量分析計設置のお披露目の式典が開催された。しかしその後、装置の組立から ^{14}C 測定までほぼ1年かかり、タンデトロン加速器質量分析計により ^{14}C が初めて検出されたのは1983年2月であった(図2a, b)。1983年9月に、やっと ^{14}C 年代測定を開始した。この間、日本アイソトープ協会では、従来から CO_2 ガスを用いた比例計数管法による ^{14}C 年代測定が行われていたため、同協会にて測定された試料を分けていただき、それをタンデトロン加速器質量分析計により測定して結果の一致度をチェックした。一致する、一致しないで一喜一憂したのである。1987年には正式に学内共同利用を開始し、その後順調に利用を進めた。

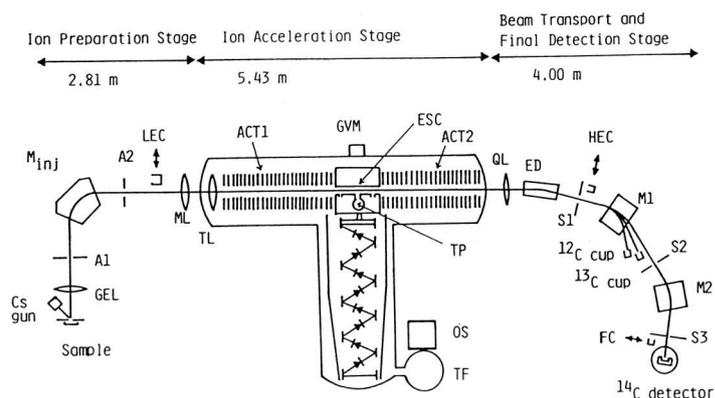


図2 ^{14}C 測定用タンデトロン加速器質量分析計の全体図

A1, A2, S1, S2, S3: ビームスリット, GEL, ML, TL, QL: 静電レンズ系, LEC, HEC, ^{12}C cup, ^{13}C cup, FC: イオン電流計測用ファラディカップ, Cs gun: セシウムスパッタ負イオン源, Minj, M1, M2: 質量分析用電磁石, ACT1, ACT2: 加速管, GVM: 発電型高電圧計, ESC: 荷電変換チャンネル, TP: 荷電変換ガス(アルゴン)トラップ用ターボ分子ポンプ, OS: 高電圧発生用の高周波交流電源の発振器, TF: 高周波交流電源のステップアップトランス, ED: 静電型15度デフレクター, ^{14}C detector: ^{14}C 検出用重イオン検出器

図1 名古屋大学タンデトロン AMS 1号機 (米国 G.I.C.社製)

このような成果に基づき、1990年度の概算要求として、タンデトロン加速器質量分析計をアイソトープ総合センターから独立させ、古川総合研究資料館と合わさって年代測定資料研究センターが発足し、初代センター長に中井信之教授が就任した(図3)。センターの発足に当たっては、中井

信之教授はもとより、当時の早川幸男学長、諏訪兼位理学部長に大変ご尽力頂いた。このように、タンデム加速器質量分析計の導入から ^{14}C 年代測定利用を進めるうえで、名古屋大学内外の多くの研究者、事務官や民間企業の方々に支援いただいた。

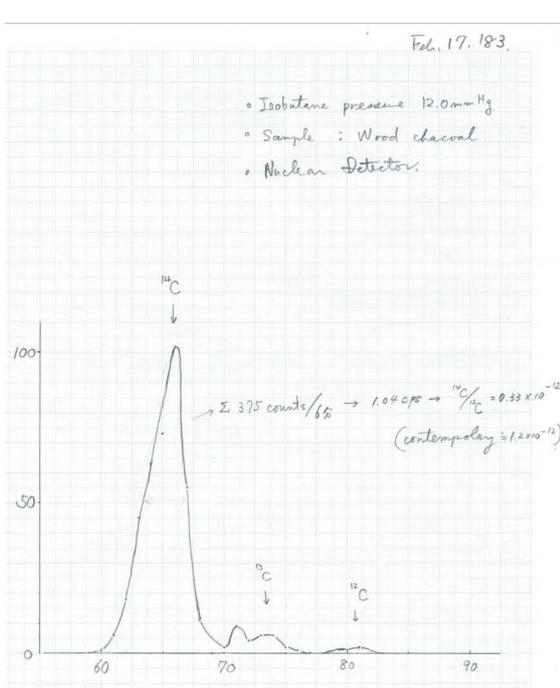


図2a 2月17日に $^{14}\text{C}^{3+}$ を初めて検出

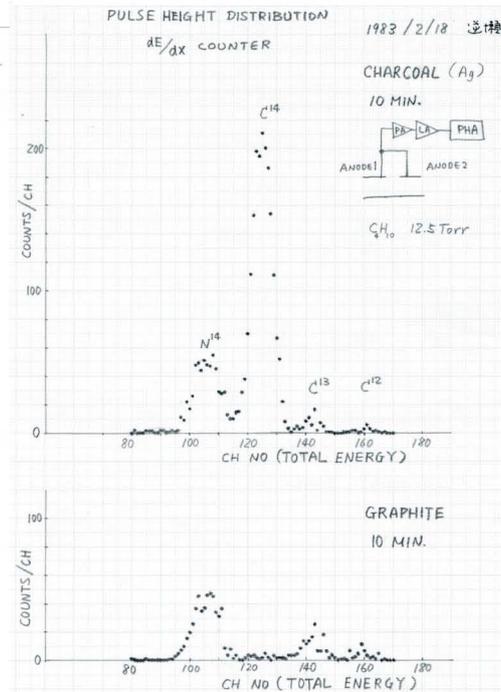


図2b 2月18日：グラファイトでは、 ^{14}C が検出されないことを確認



図3 名古屋大学年代測定資料研究センターの開所（1990/06/30、中井信之初代センター長）

表3 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計1号機による ^{14}C の検出まで

1981年2月	実験室完成
1981年3月20日	初年度分搬入
1982年2月17日	次年度分搬入
1982年3月25日	お披露目式典
	この間、加速管を2度破損
1982年10月1日	加速管組込完了
1982年10月14日	高電圧2MV達成
1982年10月19日	$^{12}\text{C}^{3+}$ の加速を確認 $^{12}\text{C}^{3+}(0.6\mu\text{A})/^{12}\text{C}(1.5\mu\text{A})$ at 1.52MV(高温高圧で合成した solid graphite を用いて)
1983年2月17日	$^{14}\text{C}^{3+}$ の検出
1983年9月	^{14}C 年代測定を開始
1987年1月	^{14}C 測定の学内共同利用を開始
1987年~2000年	^{14}C 測定に活躍
2000年7月24日	共同利用試料(文学部, 海津研究室小映介氏の堆積物試料の測定(NUTA-7003), 測定した全試料数 8,612 個をもって ^{14}C 測定を終了)

4. タンデトロン1号機を用いた研究成果の例

初代年代測定資料研究センター長である故中井信之理学部教授は、退官記念講演(1992年3月23日、於:年代測定資料研究センター古川総合研究資料館3階講義室)において天然放射能測定装置による ^{14}C 測定の研究のまとめを行っている。講演内容を録音テープから活字に起こした講演記録(中井, 1993)を改めて読み直すと、AMS ^{14}C 測定の利用が多方面の研究に様々に利用され、華々しい活躍期を迎えた有様がわかる。是非、読み返して頂きたい。こうして、AMSの特徴であるごく微量試料、約1mg程度の炭素で ^{14}C 年代測定が可能であることを生かした研究が進んだ。しかしながら、一方では、1号機の測定精度・正確度に不足を感じる傾向、炭素試料量をもっと微量にしたいという念願が徐々に拡大して第2世代のAMS装置の開発につながっていく。現在では、 ^{14}C 濃度の測定誤差 $\pm 0.1\%$ (^{14}C 年代の誤差で ± 10 年)が不可能ではない。さらに、数10 μg の炭素で ^{14}C 測定が可能となっている。

ここでは、1号機が利用された時期における研究のトピックスを2, 3の例を挙げて紹介したい。

4. 1 年輪に核実験の痕跡

1983年頃から、中井信之理学部教授と木方洋二農学部教授との共同研究として、樹木年輪中の ^{14}C 経年変動と大気圏内核実験の履歴の比較研究が始められた。岐阜県足助町付知産の1983年秋に伐採の木曾ヒノキの丸太を提供して頂き、年輪毎に分けて ^{14}C 濃度を測定した。最初の測定結果は ^{14}C 濃度がかなり凸凹したが、大気圏内の核実験により大気中にて人工的に生成された ^{14}C 量の経年変動を確認することができた(Nakai et al.1984)。実際には、1958, 1961, 1962年に総計500 Mtの核実

験が大気中で行われ, その際にパルス的に ^{14}C が大気中で造られる. 1963 年には大気中の ^{14}C 濃度は, それ以前の 2 倍近くに達する. 成層圏, 対流圏で造られた ^{14}C は, 地球上の炭素循環ののつとり, 成層圏から対流圏への移動, 対流圏から海洋表面水へ移行して, 次第に薄められる. ^{14}C 濃度の経年変動の凸凹は明らかに測定の不確定性によるものであった. その後, 注意深い再測定の結果, ^{14}C 濃度がなだらかな減少を示す経年変化を確認することができた (中村ほか 1987).

中井教授は, 木曾ヒノキ年輪の最初の測定結果を, 1984 年 4 月にスイスのチューリッヒにて開催された第 3 回加速器質量分析国際会議にて名古屋大学の AMS ^{14}C 測定の結果として報告した. その成果報告が 1984 年 4 月 9 日の THE TIMES (London) 紙に取り上げられた (図 4). 実は, 筆者が 2002 年 2 月に, 第 3 回加速器質量分析国際会議が開催されたスイス ETH 大学の AMS 施設を訪問した際に, この記事のコピーが掲示板に貼りだしてあることを見つけた. 「名古屋の成果だ」と思わず叫んだことを覚えている.

この年輪中の ^{14}C 濃度測定研究は, さらに, 木方洋二教授を中心にして南方材の研究に発展し, ベトナム産の木材では, ベトナム戦争時の枯れ葉剤の影響が疑われるような成長過程を示す ^{14}C 経年変動の記録が読み取られた (木方ほか 1997).



図 4 The TIMES (London)に掲載された, 日本産樹木に核実験起源の人工 ^{14}C が検出されたニュース (1984/April/9)

4. 2 古い資料の ^{14}C 年代測定の利用

AMS ^{14}C 測定の初期には、固体のアモルファス炭素と銀粉を混合してプレスして、加速器質量分析計のイオン源に用いるターゲットを用意した。木炭は、物理・化学的な洗浄の後、蒸し焼きにし、銀粉を混ぜてプレスする。この炭素ターゲットは、このほか ^{14}C バックグラウンド (^{14}C ブランク) が低く、試料の ^{14}C 年代として、5 万年前を超える年代が得られた。この際には、鉍物グラファイトも測定し、6.7~7.5 万年前の年代を示すことを確認した。

このように ^{14}C バックグラウンドが低いことから、5 万年前台の ^{14}C 年代を測定することができた。火山灰の堆積層序と ^{14}C 年代の関係を、5 万年前台に遡って研究することができた (坂本・中村 1993) (図 5)。その後、アモルファス炭素+銀粉混合ターゲットに替わって Fe-グラファイトのターゲットが用いられるようになった。後者は、炭素イオン出力が前者の数倍あり、短時間で高統計精度 (^{14}C 計数率が高いため) の測定が可能のため、Fe-グラファイトのターゲットが主流となった。しかし一方では、 ^{14}C バックグラウンドは Fe-グラファイトの方が高くなり、5 万年前を超える古い試料の年代測定に支障が出るようになった。

表 1 DKP層準前後から産出した材化石のタンデトロン ^{14}C 年代
Tandetron ^{14}C ages of wood materials yielded from the horizons near DKP

三瓶山 Mt.Sanbe	大山 Mt.Daisen	御岳山 Mt.Ontake	野尻湖 Lake Nojiri	関東 Kanto
Sof 大田火砕流堆積物 三瓶雲南軽石層 SUn	大山倉吉軽石層 DKP	kf 木曾川泥流堆積物 ②49850±420	下部野尻湖層Ⅲの基底部 ①49410±970	
			(キゴマ)	③52310±360 東京軽石流堆積物 TPII
		ks 草木谷火山噴出物 ④53920±970 53930±870		

図 5 約 5 万年前に噴出したとされる大山倉吉軽石(DKP)の前後の ^{14}C 年代

4. 3. 世界最古級の土器

2003 年頃、弥生土器表面の付着炭化物を AMS で直接年代測定した結果、弥生時代が 900BC 頃に始まったことが結論できるとの研究報告が国立歴史民俗博物館からあり、ここ数年間、考古学上の大きな議題となってきた。土器に付着する炭化物は、土器が食物の煮炊きに使われた際に残ったオコゲやススであり、土器の使用年代を推定するための有用な試料といえる。

著者らは、かつて青森県大平山元 1 遺跡で、旧石器の特徴を残す長者久保文化期の石器に伴って出土した無文土器の破片について、付着炭化物を年代測定し、世界最古級の年代値 (^{14}C 年代値で 12,680~13,780BP, 較正暦年代で 15,320~16,540calBP) を得た (図 6, Nakamura et al. 2001)。この際、土器と同層から採取された木炭片 3 点の ^{14}C 年代は、土器片と一致する年代と大きく食い違う年代の 2 つに分かれた (13,480, 7710, 7070BP)。この例では、付着炭化物の年代が既に求まっているこ

とから、古い方の年代が正しいことは明らかである。土器が使用された年代を知るためには、土器の使用に直接関係する試料を測定するべきであるという教訓を得た。



図6 土器の年代を報ずる朝日新聞 (1999/04/17 土曜日, 夕刊)

4. 4 古文書資料の年代測定

加速器質量分析計のイオン源に用いる炭素として、鉄触媒-水素還元グラファイトの使用が一般的になると、 ^{14}C 測定に実際に使用する元の炭素含有試料の量をかなり減ずることができるようになり、また測定の実誤差を小さくすることができるようになった。こうして ^{14}C 年代測定の応用が可能になった資料として、文化財資料、特に古文書資料がある。数 10mg の和紙試料を用いて ^{14}C 年代測定ができる。文化財試料の ^{14}C 年代測定研究は、筆者を研究代表者として補助を受けた科学研究費補助金一般研究 (C) 「加速器 C-14 年代測定法による古文化財の正確な年代決定に関する基礎研究」(1993-1994 年度) に始まるといって良い。このときの成果が、今昔物語集鈴鹿本の鑑定である。京都大学付属図書館では、同館に寄贈されていた今昔物語集の書写本の一つである鈴鹿本を一般公開するために補修が行われた。この際に、同本について行われた科学的な調査の一つとして名古屋大学の AMS による ^{14}C 年代測定である。物語が書かれた紙片はわずかたりとも年代測定には供されなかった。代わりに、本を綴じるために使われていた和紙製のコヨリが提供された。これらのコヨリの年代測定から、鈴鹿本が、今昔物語集が成立した年代とほぼ同時代に完成した写本である可能性が高いことが示された (図7, 小田ほか 1997)。もちろん, ^{14}C 年代測定の精度は、歴史イベントの発生年を正確に決定できるほど高くない。さらに、直接測定されたコヨリの年代と写本の年代との

関係など、もっと調査すべきことが残っている。しかし、AMS ^{14}C 年代測定は無視できない重要な情報を提供することができた。その後、鈴鹿本は国宝となっている。

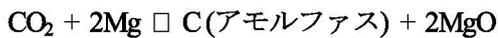
古文書に限らず、古文化財試料、そして歴史イベントの年代を示す試料の ^{14}C 年代測定が、現在活発に進められている。



図7 今昔物語集鈴鹿本（京都大学附属図書館所蔵）

4. 5 C-Ag mixture ターゲットから graphite ターゲットへ

北川ほか (1991) が日本で初めてグラファイトターゲットを導入するまでは、AMS による ^{14}C 測定では、アモルファス炭素と銀粉を混合してプレスしたペレットを、HICONEX 844 イオン源に用いてきた。通常の外来炭素などの汚染除去のための物理・化学的な洗浄処理の後、植物片や木炭は真空中にて加熱して完全に炭化する。貝殻、土壌などは、酸化剤と共に加熱燃焼して二酸化炭素 CO_2 を回収する。この CO_2 を金属マグネシウムと共に密閉容器に入れて約 3 時間、 850°C に加熱する。こうして CO_2 は、金属マグネシウムにより還元され、アモルファス炭素が得られる。



冷却後に、塩酸処理して MgO を溶解除去して、アモルファス炭素を回収する。乾燥したアモルファス炭素を高純度の銀粉末と混合し、圧縮してペレットを作成し、イオン源に充填する。

一方、 CO_2 を鉄の粉末を触媒として用いて水素還元してグラファイトを得る方法は、Vogel et al. (1984) が開発した。日本では、この技術の導入が遅れ、北川ほか (1991) が日本で初めて導入した。現在定常的に利用されている方法であり、説明するまでもないが、アモルファス炭素+銀粉混合ペレットに比べて、炭素負イオンビーム出力強度は約 5 倍であり、名古屋大学の AMS システム 1 号機で用いると、 ^{14}C 測定の統計精度（現代から 5000 年前程度）は、C-Ag ペレットで $\pm 100 \sim \pm 150$ 年（1 標準偏差）であるのに対し、Fe-グラファイトでは $\pm 60 \sim \pm 80$ 年と小さく得られた。名古屋大学 AMS 2 号機に用いると $\pm 20 \sim \pm 40$ 年であり、誤差がずいぶん小さくなっている。

5. タンデトロン加速器質量分析計 2号機の設置

1992年～1997年にかけて、東京大学、国立環境研究所、日本原子力研究所東濃地科学研究センター、名古屋大学、日本原子力研究所青森むつ事業所に、立て続けに AMS システムが導入された。前半の3施設が米国 NEC 社製のペレトロン加速器をベースにした AMS 装置で、後者の2施設がオランダの HVEE 社製のタンデトロン加速器をベースにした AMS である。日本原子力研究所青森むつ事業所の AMS システムでは、 ^{14}C 測定のほか ^{129}I 測定も保証された。

名古屋大学は AMS 装置を日本で初めて導入した研究機関であったが、世界で2番目に製作された装置であったところから、1993年頃になると各パーツの老朽化による不安定が目立ち、Fe-グラファイトターゲットを用いても、年代測定誤差を $\pm 60\sim\pm 80$ 年以下にすることは困難であった。そこで、最新型の2号機の導入を計画したのである。日本で唯一の「年代測定」を冠するセンターとして、1990年に年代測定資料研究センターが発足していたこともあり、また、大学執行部、事務局の強力なバックアップもあり、さらに、日本の経済的な好況も手伝って、2号機の導入が2005年度の補正予算で認められた。設置の経過は、表4に示したとおりである。

ただ一つ言えるところは、1号機の導入も、2号機の導入も共に2年計画で導入されたことが不幸であった点である。すなわち、両システム共に、メーカーの工場で、完全組み上げ、試運転、最終調整という一連の作業が実施されていない。このために、搬入から性能試験完了まで、ずいぶんと時間がかかった。2号機でみると、組み立てや試運転でトラブルがあると、名古屋在駐の HVEE の技術者が、オランダの工場に電話し、交換パーツが決まると、休暇のついでに取りに帰り、2週間後に名古屋へ交換パーツを持参して取り替えて様子を見る。このようなことが幾度か繰り返され、性能試験完了が予定より大幅に遅くなった。

現在では、このようなへまは繰り返さないようである。工場にて組み立て、調製、予備性能試験を、済ませて、場合によってはカスタマーの立ち会いで予備性能試験を実施する。それをできる限り分割せずに組み立てたままカスタマーに届け、最終性能試験を行う。小さいシステムでは、搬入から最終性能試験まで、1、2ヶ月で十分な場合もあるようである。

表4 タンデトロン加速器質量分析計 2号機の設置

1994年4月	年代測定資料研究センターより加速器年代測定システム(タンデトロン加速器質量分析計 2号機)を概算要求し、1995年度に設置されることが決定
1996年2月	年代測定資料研究センター古川総合研究資料館の1階地球科学資料保管室が全面的に改装され、年代測定実験室(第二実験室:165m ²)、試料調製室1(44m ²)、試料調製室2(35m ²)が完成
1996年3月	加速器年代測定システム(タンデトロン2号機)の一部が設置される
1997年3月	加速器年代測定システム(タンデトロン2号機)の完納
1999年1月	性能検収の完了
2000年4月	学内共同利用の開始
2000年9月	HVEE の技術者による分析計の最終調整の後、本格的な運用を開始

6. 加速器質量分析国際会議の開催

一方、AMSに関する国際会議は、1977年にアメリカおよびカナダの研究者グループによりAMSによる ^{14}C 測定法が開発され(Nelson et al. 1977; Bennett et al. 1977)た翌年の1978年に第1回加速器質量分析国際会議が米国ロチェスター大学で開催された(Gove et al. 1978)。その後、この会議は3年おきに開催されて順調に回を重ねている(表5)。日本人の参加は1981年にArgonne国立研究所で開催された第2回大会(Henning et al. 1981)からであり、この時は3名であった。そのうちの1名は、名古屋大学に設置される予定のタンデトロン加速器質量分析計を用いた研究計画について報告した(Furukawa et al., 1981)。その後、1984年にチューリッヒ(Wolff et al. 1984)、1987年にナイアガラ瀑布の湖畔(Gove et al. 1987)、1990年にパリ(Yiou and Raisbeck 1990)、1993年にキャンベラ・シドニー(Fifield et al. 1994)、1996年にアリゾナ(Jull et al. 1997)、1999年にウイーン(Kutschera et al. 2000)、そして2002年には名古屋大学(Nakamura et al. 2004)にて開催することができた。その後、2005年に米国カリフォルニア州のバークレイ(Knezovich et al. 2007)、2008年にイタリアのローマ(Calcagnile et al. 2010)と続き、2011年にはニュージーランドの首都ウエリントンにて開催される予定である。

全世界のAMS研究者は増加の一途にあり、地質学、考古学、地球化学、環境科学など様々な研究分野で、AMSによる極微量核種の高感度測定は必要不可欠なものとなっている。

表5 加速器質量分析(AMS)国際会議開催の歴史

回数	年, 月, 日	開催場所	参加人数	日本人 参加人数	日本人 発表件数
1	1978, 4/20-4/21	Rochester, UAS	84	0	0
2	1981, 5/11-5/13	Argonne, USA	96	3	2
3	1984, 4/10-4/13	Zurich, Switzerland	160	5	3
4	1987, 4/27-5/1	Niagara, Canada	146	8	6
5	1990, 4/23-4/27	Paris, France	150	3	3
6	1993, 9/27-10/1	Canberra & Sydney, Australia	140	8	8
7	1996, 5/20-5/24	Arizona, USA	249	20	14
8	1999, 9/6-9/10	Vienna, Austria	300	39	40
9	2002, 9/9-9/13	名古屋, 日本	237	88	66
10	2005, 9/9-9/13	Berkeley, UAS	304	52	49
11	2008, 9/9-9/13	Rome, Italy	320	52	
12	2011, 3/24-3/27 予定	Wellington, New Zealand			

7. 今後の展望

^{14}C 年代測定は、AMS法の開発により大きな発展を遂げた。また、名古屋大学の2台のタンデトロン加速器質量分析計(Nakamura et al. 2000)を比較しても解るように、AMS自身も、1980年代の初期のプリミティブなものから、1990年代には第2世代と呼ぶにふさわしい高性能機(±20~±40年の誤差)が製作されている(Mous et al. 1994)。そして特別な条件では、数千年前程度の比較的若い試料

については±10年の誤差(1σ error)で測定可能である。また、測定可能な試料数は、試料調製さえできれば年間2000個を超えることが可能である。今後の技術改良によってさらに、正確度、精度の向上、測定効率の向上が進められるであろう。また、測定に必要な炭素試料の量についても、マイクログラム程度のごく微量試料で¹⁴C年代測定を可能にするための研究が進められている。さらに、一般企業によるAMS装置の導入と¹⁴C年代測定のサービス業務が当たり前のことになってきた。AMS利用の益々の発展を期待したい。

最後に、私事であるが、名古屋大学にタンデトロン加速器質量分析計が導入されることが決まったあと、その運転・保守を任されて1980年9月にアイソトープ総合センターに着任した筆者を励まし、導いて頂いた故中井信之先生、今なお厳しい助言を授けてくださる福井崇時先生を始めとして、2台のタンデトロン加速器質量分析計に関係された皆様、学内外のAMS研究のライバル兼道連れの方々に厚くお礼を申し上げます。

参考文献

- Bennett, C.L., Beukens, R.P., Clover, M.R., Gove, H.E., Libbert, R.B., Litherland, A.E., Purser, K.H. and Sondheim, W.E.: Radiocarbon dating using electrostatic accelerators: negative ions provide the key. *Science*, 198, 508-510, 1977.
- Calcagnile, L., D'onofrio, A., Fedi, M., Mando, P.A., Quatra, G., Terrasi, F., Tuniz, C. (eds.): Proc. of 11th Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Rome, Italy, September 14-19, 2008. *Nucl. Instr. and Methods*, B268, 693-1360, 2010.
- Fifield, L.K., Fink, D., Sie, S.H. and Tuniz, C. (eds.): Proc. of 6th Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Canberra-Sydney, September 27-October 1, 1993. *Nucl. Instr. and Methods*, B92, 1-524, 1994.
- 古川路明: 加速器を利用した質量分析⁻¹⁴C, ³H以外の核種への応用-. *Tracer*, 2, 23, 1979.
- Furukawa, M., Nakai, N. and Nakano, E.: Research project at Nagoya University. Proc. of 2nd Int. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne, May 11-13, 488-489, 1981.
- Gove, H. E. (ed.): Proc. of 1st Conf. on Radiocarbon Dating with Accelerators. Univ. of Rochester, April 20-21, 401p, 1978.
- Gove, H. E., Litherland, A.E. and Elmore, D. (eds.): Proc. of 4th Int. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Niagara-on-the-Lake, April 27-30, *Nucl. Instr. and Methods*, B29, 1-455, 1987.
- Henning, W., Kutschera, W., Smither, R.K. and Yntema, J.L. (eds.): Proc. of 2nd Int. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne, May 11-13, 503p, 1981.
- Jull, A.J.T., Beck, J.W. and Burr, G.S. (eds.): Proc. of 7th Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Tucson, Arizona, May 20-24, *Nucl. Instr. and Methods*, B123, 1-612, 1997.
- 木方洋二・米延仁志・森下二三夫・服部芳明: 樹木樹幹内の¹⁴C濃度. 名古屋大学古川総合研究資料館報告, 8, 41-46, 1992.
- 北川浩之・増澤敏行・松本英二・山口和典・中村俊夫: 水素還元法によるAMS法炭素-14測定のためのグラフアイトターゲットの成作法. 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計業績報告書, II, 113-122, 1991.
- Knezovich, J., Brown, T., Buchholz, B., Finkel, R., Guilderson, T., Kashgarian, M., Nimz, G., Ognibene, T., Tunney, S., Vogel, J. (eds.): Proc. of 10th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, Berkeley, California, USA, September 5-10, *Nucl. Instr. and Methods*, B259, 1-801, 2007.
- Kutschera, W., Golser, R., Priller, A. and Strohmaier, B. (eds.): Proc. of 8th Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Vienna, September 6-10, *Nucl. Instr. and Methods*, B172, 1-977, 2000.
- Mous, D.J.W., Gott dang, A. and van der Plicht, J. Status of the first HVEE ¹⁴C AMS in Groningen. *Nucl. Instrum and Methods in*

Physics Research, B92, 12-15, 1994.

名古屋大学アイソトープ総合センター (編) : 特集: 加速器による微量同位体測定法の各分野への応用. *Tracer*, 3, 8-17, 1979.

名古屋大学年代測定総合研究センター: 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計業績報告書, I~XXI, 1989~2010.

中井信之: 加速器による低レベル放射性炭素およびトリチウムの直接測定. *Tracer*, 2, 18-22, 1979.

Nakai, N., Nakamura, T., Kimura, M., Sakase, T., Sato, S., Sakai, A. : Accelerator mass spectrometry of ^{14}C at Nagoya University. *Nucl. Instrum and Methods in Physics Research*, B5, 171-174, 1984.

中井信之: 加速器質量分析による年代測定法の大改革. 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計業績報告書, IV, 85-106, 1993.

中村俊夫・中井信之・木村雅也・大石昭二・服部芳明・木方洋二: 樹木年輪 (1945-1983) の ^{14}C 濃度変動. 地球化学, 21, 7-12, (1987).

Nakamura, T., Taniguchi, Y., Tsuji, S., Oda, H. : Radiocarbon dating of charred residues on the earliest pottery in Japan. *Radiocarbon*, 43, 1129-1138, 2001.

Nakamura, T., E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, H. Takahashi, M. Adachi, L. Pals, A. Gott dang, and N. Suya : The HVEE Tandem AMS system at Nagoya University. *Nucl. Instrum and Methods in Physics Research*, B172, 52-57, 2000.

Nakamura, T., Kobayashi, K., Matsuzaki, H., Murayama, M., Nagashima, Y., Oda, H., Shibata, Y., Tanaka, Y., Furukawa, M. (eds.) : Proc. of 9th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, Nagoya, September 9-13, *Nucl. Instr. and Methods*, B223-224, 1-858, 2004.

Nelson, D.E., Korteling, R.G. and Stott, W.R.: Carbon-14: direct detection at natural concentrations. *Science*, 198, 507-508, 1977.

小田寛貴・中村俊夫・古川路明: 鈴鹿本今昔物語集の年代測定. 鈴鹿本今昔物語集-影印と考証-下巻, 京都大学学術出版会, 527-538.

Purser, K.H.: US Patent 4037100 (filed March 1, 1976; Issued July 19, 1977)

Purser, K.H.: Direct detection of ^{14}C and other rare atoms using accelerator techniques. *Tracer*, 2, 2-17, 1979.

坂本 亨・中村俊夫: タンデトロンによる第四紀後期火山噴出物測年の現状. 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計業績報告書, IV, 127-133, 1993.

Vogel, J.S., Nelson, D.E., Soufhan, J.R. : Performance of catalytically condensed carbon for use in accelerator mass spectrometry. *Nucl. Instr. and Methods*, 233 (B5), 289-293, 1984.

Wolff, W., Polach, H.A., and Andersen, H.H. (eds.): Proc. of 3rd Int. Symp. on Accelerator Mass Spectrometry. Zurich, April 10-13, *Nucl. Instr. and Methods*, B5, 91-448., 1984.

Yiou, F. and Raisbeck, G.M. (eds.) : Proc. of 5th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, Paris, April 23-27, *Nucl. Instr. and Methods*, B52, 211-637, 1990.

(本稿は, より多くの読者に読んで頂くために, 第11回AMSシンポジウム報告集(2010年5月23日発行)の「名古屋大学におけるAMS研究の歴史(中村俊夫)」(p.91-105)を転載したものである)。